

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 11-181162

(43)Date of publication of application : 06.07.1999

(51)Int.Cl.

C08L 23/00
//(C08L 23/00
C08L 23:08
C08L 23:16
C08L 77:00)

(21)Application number : 09-355497

(71)Applicant : UBE IND LTD

(22)Date of filing : 24.12.1997

(72)Inventor : YAMAMOTO SHINJI
SAKAMOTO MITSUNARI
ASANO YUKIHIKO

(54) HIGH-MELT-TENSION POLYOLEFIN COMPOSITION AND PREPARATION THEREOF

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a polyolefin compsn. which is excellent in melt tension and is suitable for blow molding, foaming, film formation, extrusion coating or the like, by dispersing polyamide fibers in a matrix comprising a polyolefin and an ethylene-a-olefin copolymer rubber.

SOLUTION: This compsn. comprises (A) 99.9-92 wt.% polyolefin, (B) 0-2 wt.% ethylene-a-olefin copolymer rubber, and (C) 0.1-6 wt.% polyamide fibers (the sum of A, B, and C being 100 wt.%). In the compsn., the polyamide fibers are dispersed pref. in an average fiber diameter of 1 μ m or lower. The compsn. is prepd. by melt mixing A and B, melt mixing and extruding the resultant matrix with C, and stretching or rolling the resultant extrudate at the m.p. of C or lower to disperse C as minute fibers.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 17.01.2003

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-181162

(43) 公開日 平成11年(1999) 7月6日

(51) Int.Cl.⁶

識別記号

F I

C 0 8 L 23/00

C 0 8 L 23/00

// (C 0 8 L 23/00

23: 08

23: 16

77: 00)

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 8 頁)

(21) 出願番号

特願平9-355497

(22) 出願日

平成9年(1997)12月24日

(71) 出願人 000000206

宇部興産株式会社

山口県宇部市西本町1丁目12番32号

(72) 発明者 山本 新治

千葉県市原市五井南海岸8番の1 宇部興
産株式会社高分子研究所

(72) 発明者 坂本 充也

千葉県市原市五井南海岸8番の1 宇部興
産株式会社高分子研究所

(72) 発明者 浅野 之彦

千葉県市原市五井南海岸8番の1 宇部興
産株式会社高分子研究所

(54) 【発明の名称】 高溶融張力ポリオレフィン組成物とその製造法

(57) 【要約】

【課題】 溶融張力に優れブロー成形、発泡成形、フィルム成形、押出フィルムコーティングに適したポリオレフィン組成物を提供することを目的とする。

【解決手段】 (A) ポリオレフィン99.9~92重量%, (B) エチレン- α -オレフィン共重合ゴム, 及び (C) ポリアミド繊維0.1~6重量%からなるポリオレフィン組成物。

【特許請求の範囲】

【請求項1】以下(A)、(B)、及び(C)；

(A) ポリオレフィン 99.9～92重量%、(B) エチレン- α -オレフィン共重合ゴム 0～2重量%及び、(C) ポリアミド繊維 0.1～6重量% (但し、(A)+(B)+(C)=100重量%) からなる高溶融張力ポリオレフィン組成物。

【請求項2】ポリオレフィン組成物中に(C) ポリアミド繊維が分散してその平均繊維径が1 μ m以下であることを特徴とする請求項1記載の高溶融張力ポリオレフィン組成物。

【請求項3】ポリオレフィン組成物の溶融張力(MT)とメルトフローレイト(MFR)、及びポリアミド繊維量(FC)の関係が $\text{Log MT} \geq -0.49 \text{Log MFR} + 0.14 \text{FC} + 0.40$ で示される請求項1記載の高溶融張力ポリオレフィン組成物。

【請求項4】(A) ポリオレフィンと(B) エチレン- α -オレフィン共重合ゴムとを溶融混練したマトリックスに、(C) ポリアミドを溶融混練して押出し、ポリアミドをその融点以下の温度で延伸又は圧延して微細な繊維状に分散させる請求項1記載の高溶融張力ポリオレフィン組成物の製造法。

【請求項5】(A) ポリオレフィンと(B) エチレン- α -オレフィン共重合ゴムとを溶融混練したマトリックスに、(C) ポリアミドを溶融混練して押出し、ポリアミドをその融点以下の温度で延伸又は圧延して微細な繊維状に分散させて、更に(C) ポリアミド繊維の融点以下の温度で(A) ポリオレフィンを溶融混練する請求項1記載の高溶融張力ポリオレフィン組成物の製造法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、溶融張力に優れブロー成形、発泡成形、フィルム成形、押出フィルムコーティングなどの成形性に適したポリオレフィン組成物に関する。

【0002】

【従来の技術】ポリプロピレンは溶融張力が弱いためブロー成形、発泡成形、フィルム成形などに必ずしも良い材料とは言えなかった。しかし、ポリエチレンより融点が高く機械的強度に優れているために、これらの成形に使用したいために改良が望まれていた。このため長鎖分岐を有するポリプロピレンが溶融張力が優れているのでブロー成形、発泡成形、フィルム成形、押出フィルムコーティングなどに適切であることはよく知られている。長鎖分岐を有するポリプロピレンは、通常のポリプロピレンを活性化酸素濃度を与える環境下で電子線を照射する方法(特開昭62-121704号公報)や、過酸化物を作用さす方法(特開平2-298536号公報)により得られるが、これらの方法は大きな装置が必要である。このために簡単にポリプロピレンの溶融張力を改

良する方法が求められていた。特開平7-330935号公報や特開平8-157633号公報には結晶性ポリオレフィン発泡体として結晶性ポリプロピレン系樹脂にテフロン繊維を添加して発泡に適した組成物を得て、溶融張力を向上させて発泡成形を可能にしている。溶融張力の更なる改良が必要である。

【0003】一方、本発明者らは微細なポリアミド繊維でポリオレフィンとゴムをマトリックスとした分散した組成物(特開平7-38189号公報や特開平9-59431号公報)を開示した。この組成物はハンドリング性に優れてペレット状で得られるので、樹脂及びゴムと混練して強度、弾性率、伸びに優れている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明は上記の問題を解決して大がかりな装置を使用することなく、溶融張力に優れ、ブロー成形、発泡成形、フィルム成形、押出フィルムコーティングなどに適切であるポリオレフィン組成物を提供することを目的とする。

【0005】

【発明が解決しようとする手段】本発明によれば、

(A) ポリオレフィン99.9～92重量%、(B) エチレン- α -オレフィン共重合ゴム及び、(C) ポリアミド繊維 0.1～6重量%からなる高溶融張力ポリオレフィン組成物が提供される。そして高溶融張力ポリオレフィン組成物中に(C) ポリアミド繊維が分散してその平均繊維径が1 μ m以下であり、ポリオレフィン組成物の溶融張力(MT)がメルトフローレイト(MFR)及びポリアミド繊維量(FC)との関係が $\text{Log MT} \geq -0.49 \text{Log MFR} + 0.14 \text{FC} + 0.40$ で示される。又、(A) ポリオレフィンと(B) エチレン- α -オレフィン共重合ゴムとを溶融混練したマトリックスに、(C) ポリアミドを溶融混練して押出し、ポリアミドをその融点以下の温度で延伸又は圧延して微細な繊維状に分散させる高溶融張力ポリオレフィン組成物の製造法、及び(A) ポリオレフィンと(B) エチレン- α -オレフィン共重合ゴムとを溶融混練したマトリックスに、(C) ポリアミドを溶融混練して押出し、ポリアミドをその融点以下の温度で延伸又は圧延して微細な繊維状に分散させて、更に(C) ポリアミド繊維の融点以下の温度で(A) ポリオレフィンを溶融混練する高溶融張力ポリオレフィン組成物の製造法が提供される。

【0006】

【発明の実施の形態】以下、本発明の高溶融張力ポリオレフィン組成物及びその製造法について具体的に説明する。高溶融張力ポリオレフィン組成物は以下の(A)成分、(B)成分、及び(C)成分からなる。各成分を具体的に説明する。(A)成分はポリオレフィンであって、融点が80～250℃の範囲のものが好ましい。又、50℃以上、特に好ましくは50～200℃のビカット軟化点を有するものが用いられる。このような好適

な例としては炭素数2～8のオレフィンの単独重合体や共重合体、及び炭素数2～8のオレフィンとスチレンやクロロスチレン、 α -メチルスチレンなどの芳香族ビニル化合物との共重合体、炭素数2～8のオレフィンと酢酸ビニルとの共重合体、炭素数2～8のオレフィンとアクリル酸あるいはアクリル酸エステルとの共重合体、炭素数2～8のオレフィンとメタアクリル酸あるいはそのエステルとの共重合体、及び炭素数2～8のオレフィンとビニルシラン化合物との共重合体が好ましく用いられるものとして挙げられる。

【0007】具体例としては、高密度ポリエチレン、低密度ポリエチレン、線状低密度ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン・プロピレンブロック共重合体、エチレン・プロピレンランダム共重合体、ポリ4-メチルペンテン-1、ポリブテン-1、ポリヘキセン-1、エチレン・酢酸ビニル共重合体、エチレン・ビニルアルコール共重合体、エチレン・アクリル酸共重合体、エチレン・アクリル酸メチル共重合体、エチレン・アクリル酸エチル共重合体、エチレン・アクリル酸プロピル共重合体、エチレン・アクリル酸ブチル共重合体、エチレン・アクリル酸2-エチルヘキシル共重合体、エチレン・アクリル酸ヒドロキシエチル共重合体、エチレン・ビニルトリメトキシシラン共重合体、エチレン・ビニルトリエトキシシラン共重合体、エチレン・ビニルシラン共重合体、エチレン・スチレン共重合体、及びプロピレン・スチレン共重合体などがある。又、塩素化ポリエチレンや臭素化ポリエチレン、クロロスルホン化ポリエチレンなどのハロゲン化ポリオレフィンも好ましく用いられる。

【0008】これら(A)成分のポリオレフィンのなかで好ましいものとしては、高密度ポリエチレン(HDPE)、ポリプロピレン(PP)、エチレン・プロピレンブロック共重合体、エチレン・プロピレンランダム共重合体などが挙げられ、中でもメルトフローインデックス(MFR)が0.2～50g/10分の範囲のものが最も好ましいものとして挙げられる。これらを1種のみ用いてもよく、2種以上を組合わせて用いてもよい。

【0009】(B)成分はエチレン- α -オレフィン共重合ゴムであり、エチレンと炭素数3～8の α -オレフィン及びジエンを含むものである。具体的にはエチレン-プロピレン、エチレン-ブテン、エチレン-ペンテン、エチレン-ヘキセン、エチレン-オクテンなどである。又、エチレン-プロピレン-ブテンなどの3元共重合体、エチレン-プロピレン-ジエンなどの3元共重合体である。なかでもエチレン-プロピレンゴム(EPR)、エチレン-プロピレン-ジエン(EPDM)が好ましい。ジエン成分としてエチリデンノルボルネン、ジシクロペンタンなどが好ましい。ジエン成分の割合はヨウ素価で言うと0～30の範囲が好ましい。プロピレン含有量は20～55重量%が好ましい。ムーニー粘度は20～110の範囲である。これらを1種のみ用いても

よく、2種以上を組合わせて用いてもよい。

【0010】(C)成分は、主鎖中にアミド基を有する熱可塑性ポリアミド(以下、ポリアミド)からなる繊維であり、融点135～350℃の範囲のものが用いられ、しかも(A)成分のポリオレフィンの融点より高いものであり、中でも融点160～265℃の範囲のものが好ましい。押出し及び延伸によって強靱な繊維を与えるポリアミドが好ましいものとして挙げられる。ポリアミドの繊維(以下、ポリアミド繊維)は、平均繊維径が1 μ m以下の微細な繊維であり、以下に述べる方法で製造される。アスペクト比(繊維長/繊維径)は20以上、1,000以下であることが分散性や補強性が優れている。

【0011】ポリアミドの具体例としては、ナイロン6、ナイロン66、ナイロン6-ナイロン66共重合体、ナイロン610、ナイロン612、ナイロン46、ナイロン11、ナイロン12、ナイロンMXD6、キシリレンジアミンとアジピン酸との重縮合体、キシリレンジアミンとピメリン酸との重縮合体、キシリレンジアミンとスベリン酸との重縮合体、キシリレンジアミンとアゼライン酸との重縮合体、キシリレンジアミンとセバシン酸との重縮合体、テトラメチレンジアミンとテレフタル酸の重縮合体、ヘキサメチレンジアミンとテレフタル酸の重縮合体、オクタメチレンジアミンとテレフタル酸の重縮合体、トリメチルヘキサメチレンジアミンとテレフタル酸の重縮合体、デカメチレンジアミンとテレフタル酸の重縮合体、ウンデカメチレンジアミンとテレフタル酸の重縮合体、ドデカメチレンジアミンとテレフタル酸の重縮合体、テトラメチレンジアミンとイソフタル酸の重縮合体、ヘキサメチレンジアミンとイソフタル酸の重縮合体、オクタメチレンジアミンとイソフタル酸の重縮合体、トリメチルヘキサメチレンジアミンとイソフタル酸の重縮合体、デカメチレンジアミンとイソフタル酸の重縮合体、ウンデカメチレンジアミンとイソフタル酸の重縮合体、及びドデカメチレンジアミンとイソフタル酸の重縮合体などが挙げられる。

【0012】これらのポリアミドの内、特に好ましい具体例としては、ナイロン6(PA6)、ナイロン66(PA66)、ナイロン12(PA12)、ナイロン6-ナイロン66共重合体などが挙げられる。これらの1種又は2種以上でもよい。これらのポリアミドは、10,000～200,000の範囲の分子量を有していることが好ましい。

【0013】高溶融張力ポリオレフィン組成物の製造法について説明する。2つの方法がある。1つの方法について述べる。(A)成分と(B)成分を熔融混練して反応性マトリックスを調整する。このマトリックスは

(A)成分中に(B)成分が島状に分散した構造をとってもよいし、逆に(B)成分中に(A)成分が島状に分散した構造をとってもよい。そして(A)成分と(B)

成分は界面で結合していることが望ましい。そのために (A) 成分と (B) 成分を熔融混練してマトリックスを調製する時にカップリング剤を介在させることが重要である。カップリング剤の持つアルコキシ基、塩素やビニル基、グリシドキシ基、メタクリル基、アミノ基、メルカプト基などの有機官能基が界面に介在して (A) 成分と (B) 成分を結合させる橋渡しの役割をする。(A) 成分と (B) 成分が結合したマトリックスに (C) 成分を熔融混練する。(C) 成分の融点以下の温度で延伸又は圧延して微細な繊維として分散させると、(A) 成分、(B) 成分及び (C) 成分とが相互に結合した

(A) 成分—(C) 成分—(B) 成分からなる高溶融張力ポリオレフィン組成物が得られることになる。

【0014】他のもう1つの方法について説明する。

(A) 成分と (B) 成分を熔融混練する時にカップリング剤を存在させて調整する。熔融混練物に (C) 成分を熔融混練して (C) 成分をその融点以下の温度で延伸又は圧延して微細な繊維として分散させて押出すとカップリング剤を介在して (A) 成分と (B) 成分が相互に結合した (A) 成分—(C) 成分—(B) 成分からなるポリアミド繊維強化樹脂組成物が得られるので、これに更に必要量の (A) 成分を追加して (C) 成分の融点以下の温度で熔融混練して押出し高溶融張力ポリオレフィン組成物が得られることになる。この時も上記で述べた通りカップリング剤を介在して (A) 成分、(B) 成分及び (C) 成分が相互に結合して、(C) 成分が微細な繊維として分散した状態になる。

【0015】マトリックス中に添加する (C) 成分のカップリング剤の具体例としては、シランカップリング剤、チタネートカップリング剤、不飽和カルボン酸、不飽和カルボン酸の誘導体及び有機過酸化物が挙げられる。最も好ましいものとして (A) 成分や (B) 成分をゲル化させることが少ないシランカップリング剤である。その具体例としては、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリス(β-メトキシエトキシ)シラン、ビニルトリアセチルシラン、γ-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、β-

(3, 4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、γ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、γ-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、γ-グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、γ-グリシドキシプロピルエチルジメトキシシラン、γ-グリシドキシプロピルエチルジエトキシシラン、N-β-(アミノエチル)アミノプロピルトリメトキシシラン、N-β-(アミノエチル)アミノプロピルトリエトキシシラン、N-β-(アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N-β-(アミノエチル)アミノプロピルエチルジメトキシシラン、N-β-(アミノエチル)アミノプロピルエチルジエトキシシラン、γ-アミノプロピルトリエトキシシラン、N-β-

エニル-γ-アミノプロピルトリメトキシシラン、γ-[N-(β-メタクリロキシエチル)-N,N-ジメチルアンモニウム(クロライド)]プロピルトリメトキシシラン、及びスチリルジアミノシランなどが挙げられる。これらを単独でも複数組み合わせる用いることができる。

【0016】シランカップリング剤は、(A) 成分と (B) 成分の合計100重量部に対し0.1~5.5重量部の範囲が好ましく、特に好ましくは0.1~5.0重量部の範囲である。シランカップリング剤の量が0.1重量部よりも少ないと、(A) 成分及び (B) 成分との間に強固な結合が形成されず、強度の高い組成物が得られず、強度の低い組成物しか得られない。シランカップリング剤の量が5.5重量部よりも多いと弾性率に優れた組成物が得られない。

【0017】シランカップリング剤を用いる場合は、有機過酸化物を併用できる。有機過酸化物を併用することにより (A) 成分の分子鎖にラジカルが形成されシランカップリング剤と反応することにより (A) 成分とシランカップリング剤の反応は促進されるからである。有機過酸化物の使用量は (A) 成分と (B) 成分の合計100重量部に対して0.01~1.0重量部である。有機過酸化物としては、1分間の半減期温度が (A) 成分の融点或いは (B) 成分の融点のいずれかが高い方と同じ温度ないし、この温度より30℃程高い温度範囲であるものが好ましく用いられる。具体的には1分間の半減期温度が80~260℃程度のものが好ましく用いられる。

【0018】有機過酸化物の具体例としては、ジ-α-クミルパーオキサイド、1, 1-ジ-tert-ブチルパーオキシ-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン、1, 1-ジ-tert-ブチルパーオキシシクロヘキサン、2, 2-ジ-tert-ブチルパーオキシブタン、n-ブチル-4, 4-ジ-tert-ブチルパーオキシバレリネート、2, 2-ビス(4, 4-ジ-tert-ブチルパーオキシシクロヘキサン)プロパン、2, 2, 4-トリメチルペンチルパーオキシネオデカネート、α-クミルパーオキシネオデカネート、tert-ブチルパーオキシネオヘキサネート、tert-ブチルパーオキシバレート、tert-ブチルパーオキシアセート、tert-ブチルパーオキシラウレート、tert-ブチルパーオキシベンゾエート、tert-ブチルパーオキシイソフタレートなどが挙げられる。

【0019】(A) 成分、(B) 成分及び (C) 成分の割合は以下の如くなる。(A) 成分のポリオレフィン99.9~92重量%、(B) 成分のエチレン-α-オレフィン共重合ゴムは0~2重量%、(C) 成分のポリアミド繊維は0.1~6重量%からなる高溶融張力ポリオレフィン樹脂組成物である。好ましくは (A) 成分は99.5~95重量%、(B) 成分は0~1重量%、

(C) 成分が0.5~5重量%である。(A) 成分が99.9重量%を超えると熱可塑性ポリアミドの添加量が少なく添加効果が発現しないし、92重量%より少ない

とマトリックスとしての量が不足して溶融張力が安定しない。(B)成分は2重量%を超えると組成物の弾性率が不足する。(B)成分はなくてもよい。弾性率に応じて選べばよい。(C)成分は6重量%を超えると微細な繊維の溶融張力が安定しないし、0.1重量%より少ないと微細な繊維が不足して組成物の溶融張力の向上効果が発現しない。(C)成分はその殆どが微細な繊維として上記マトリックス中に分散している。具体的には70重量%、特に好ましくは90重量%以上が微細な繊維として分散している。(C)成分の繊維は、平均繊維径が1 μ m以下であることが好ましい。アスペクト比(繊維長/繊維径の比)は20以上であり1,000以下であることが補強性がある分散し易いので好ましい。そして、(A)成分は(B)成分及び(C)成分とは界面で相互に結合している。

【0020】次に本発明の高溶融張力ポリオレフィン組成物の製造工程について更に詳細に説明する。以下の工程(1)～(5)から製造される。

(1) (A)成分のポリオレフィン及び(B)成分のエチレン- α -オレフィン共重合ゴムとカップリング剤(シランカップリング剤)とを溶融混練して(A)成分のマトリックスを調整する工程、(2)上記マトリックスと(A)成分のポリアミドを溶融混練して各成分をカップリング剤を介して溶融混練・化学変成する工程、

(3)得られた上記の化学変成混練物を(C)成分のポリアミドの融点より高い温度(10℃以上)で押出す工程、(4)上記押出物を(A)成分の融点以上でしかも

(C)成分の融点以下でドラフトをかけつつ延伸又は圧延する工程及び、(5)延伸又は圧延した組成物に更に必要量の残りの(不要なら追加しない)(A)成分のポリオレフィンを溶融混練する工程により高溶融張力ポリオレフィン組成物が製造される。

【0021】各工程を更に具体的に説明する。工程

(1)；以下の通りである。

(1) (A)成分のポリオレフィン、及び(B)成分のエチレン- α -オレフィン共重合ゴムとカップリング剤を溶融混練してマトリックスを調整する工程について説明する。溶融混練温度は(A)成分の融点以上である。融点より10℃以上高い温度である。融点より10℃以上高い温度で溶融混練すると(A)成分と(B)成分がカップリング剤とが反応して化学変成される。溶融混練は樹脂やゴムの混練に通常用いられている装置で行うことができる。このような装置としては、バンバリー型ミキサー、ニーダー、ニーダーエキストルーダー、オープンロール、一軸混練機、二軸混練機などが用いられる。これらの装置の中では短時間で且つ連続的に溶融混練が行える点で二軸混練機が最も好ましい。以下工程の溶融混練も同様な装置である。

【0022】工程(2)；以下の通りである。

(2) 上記マトリックスと(C)成分を溶融混練して各

成分をカップリング剤を介して化学変成する工程について説明する。溶融混練温度は(C)成分のポリアミドの融点以上である。融点より10℃以上高い温度でカップリング剤と混練しカップリング剤と相互に反応させ各成分を化学変性する。溶融混練温度が(C)成分の融点より低いと混練できないし、分散しないので、融点より高い温度、10℃以上高い温度で溶融混練する。

【0023】工程(3)；以下の通りである。

(3)得られた上記の化学変成混練物を(C)成分のポリアミドの融点より高い温度で押出工程について説明する。押出工程において得られた混練物を紡糸口金或いはインフレーションダイ又はTダイから押出す。紡糸、押出しのいずれも成分(C)成分の融点より高い温度で実施する必要がある。具体的には、(C)成分の融点より高い温度、この融点より10℃以上高い温度の範囲で実施することが好ましい。本工程で(C)成分の融点より低い温度で溶融・混練を行っても、混練物は(A)成分マトリックス中に(C)成分の微細な粒子が分散した構造にはならない。従って、かかる混練物を紡糸・延伸しても、(C)成分は微細な繊維にはなり得ない。

【0024】工程(4)；以下の通りである。

(4)溶融混練・化学変成して押出物を(C)成分の融点以下でドラフトをかけつつ延伸又は圧延する工程について説明する。押出された紐状乃至糸状紡糸は、連続的に冷却、延伸、又は圧延処理して行われる。冷却・延伸又は圧延処理は、(C)成分の融点より低い温度で行われる。延伸及び圧延することにより、より強固な繊維が形成されるので繊維強化樹脂組成物としての特性がより発揮できてより好ましい。延伸又は圧延は、例えば混練物を紡糸口金から押し出して紐状ないし糸状に紡糸し、これをドラフトを掛けつつホビンなどに巻取る。または切断してペレットにするなどの方法で実施できる。ここでドラフトを掛けるとは紡糸口金速度より巻取速度を高くとることを言う。巻取速度/紡糸口金速度の比(ドラフト比)は、1.5～100の範囲が好ましく、更に好ましくは2～50の範囲、特に好ましくは3～30である。

【0025】工程(5)；以下の通りである。

(5)延伸又は圧延して得られたポリアミド繊維強化樹脂組成物に更に必要な残り(不要なら追加しない)の(A)成分のポリオレフィンを溶融混練する工程で、ポリオレフィンを完全に溶融さす温度で溶融混練する。(C)成分が融解しない温度で行うことが重要である。

【0026】上記各第(1)、(2)、(3)及び

(4)工程は工程毎に分離して説明したが、(A)成分、(B)成分、(C)成分、及び有機過酸化物などを供給できる第1供給口、第2供給口、第3供給口、及び第4供給口などを有すると共に第1混練帯、第2混練帯、第3混練帯及び第4混練帯などを有する二軸混練機などを用いて一括した連続プロセスで処理することも可

能である。そうすることにより経済的、安定した安全な製造方法になる。

【0027】かくして高熔融張力を有するポリオレフィン組成物が得られる。そして、ポリオレフィン組成物を230℃で熔融させて一定押出速度(10mm/min)、巻取速度(10mm/min)で熔融延伸した時の熔融張力(MT)、MFR及びポリアミド繊維量(FC)の関係は、 $\text{Log MT} \geq -0.49 \text{Log MFR} + 0.14 \text{FC} + 0.40$ 、好ましくは $\text{Log MT} \geq -0.49 \text{Log MFR} + 0.14 \text{FC} + 0.50$ で示される関係を満足し、微細なポリアミド繊維で強化されているため熔融状態での熔融張力が高く、伸長粘度の歪み硬化性を有する特異な粘弾性挙動を示すことによりブロー成形、発泡成形、フィルム成形などが安定して成形できることになる。

【0028】

【実施例】以下、実施例及び比較例を示して、本発明についてより具体的に説明するが本発明はこれらの実施例の範囲に限定されるものではない。実施例及び比較例において、高熔融張力ポリオレフィン組成物に関する物性は以下のようにして測定した。

繊維形状：；平均繊維径：ポリアミド繊維強化樹脂組成物をトルエンに溶解して繊維分を取り出し洗浄した後走査型電子顕微鏡で観察し、微細な繊維で分散している場合は分散性良好であり、微細な繊維で分散していない場合は分散性不良と評価して、分散性良好な場合は、分散した微細繊維200本について上記の走査型電子顕微鏡で繊維径を測定しその平均を求めて平均繊維径とした。

熔融張力：；東洋精機製作所製キャピログラフを使用して樹脂温度230℃、押出速度10mm/min、巻取速度10mm/min、ノズル径2.09mmφ、ノズル長さ8mmで熔融延伸した時の熔融張力(MT)を測定した。

MFR：；ASTM D1238に準じて温度230℃、荷重2,160gで測定した。

MTとMFRの関係：；測定したMT、MFR及びポリアミド繊維量の関係を重回帰分析して重回帰式、回帰係

数を求めた。次式の通りである。

$$\text{Log MT} \geq -0.49 \text{Log MFR} + 0.14 \text{FC} + 0.40$$

光沢度：；JIS Z8741に準じて入射角60°について鏡面光沢度を測定して%で示した。

【0029】〔参考例1〕(A)成分としてポリプロピレン(グラントポリマー社製、J105、融点166℃、MFR=1.0)60重量部に(B)成分としてEPDM(三井化学社製、EPT4021、エチレン含有量52重量%、ML=23、ジエン成分=ENB)40重量部を使用して、シランカップリング剤としてγ-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン0.25重量部と有機過酸化物のn-ブチル-4,4-ジ-tert-ブチルパーオキシバレリネート0.1重量部、粘着付与剤としてタッキロール1.8重量部を150℃に設定したパンバリーミキサー(1.7リットル)で熔融混練して220℃でダンプした後ペレタイズした。このペレット100重量部と(C)成分としてナイロン66(宇部興産社製、宇部ナイロン2022B、融点245~250℃、分子量22,000)50重量部を260℃に設定して3mmφのダイスを付けた二軸押出機で紐状に押しシラフト比10を掛けてかけ室温で引取りつつペレタイザーでペレット化した。得られたポリアミド繊維強化樹脂組成物のペレットを熱トルエンでポリプロピレンとEPDMを抽出した。不溶分を走査型電子顕微鏡で観察すると平均繊維径が0.6μmの微細な繊維状であった。配合量及び成分組成と繊維径を表1に示した。

【0030】〔参考例2〕(A)成分としてポリプロピレン(グラントポリマー社製、B101H、融点166℃、MFR=1.0)50重量部、(B)成分としてEPDM50重量部を使用した他は参考例1と同様にしてポリアミド繊維強化樹脂組成物を得た。平均繊維径が0.6μmの微細な繊維状であった。配合量及び成分組成と繊維径を表1に示した。

【0031】

【表1】

成分	重量部	参考例	
		1	2
成分	重量部		
(A) PP		60	50
(B) EPDM		40	50
(C) PA66		50	50
成分(A)		40	33.3
組成(B)		27	33.3
重量%(C)		33	33.3
繊維径 μm		0.6	0.5

【0032】〔実施例1～2〕参考例1で得られたポリアミド繊維強化樹脂組成物に更に(A)成分としてポリプロピレン(グランドポリマー社製, B101W, 融点166℃, MFR=0.7)を表2に示した配合で, 二軸押出機でシリンダー温度190～230℃でシリンダー温度190～230℃で押出してペレット化して高溶融張力ポリプロピレン組成物を得た。このペレットのMFRとMTを測定して表2に示した。

【0033】〔実施例3～5〕参考例2で得られたポリ

アミド繊維強化樹脂組成物に代えて表2に示した配合にした以外は実施例1と同様にしてペレット化して, 高溶融張力ポリプロピレン組成物を得た。このペレットのMFRとMTを測定して表2に示した。

【0034】〔比較例1〕参考例のポリアミド繊維強化樹脂組成物を配合しなかった以外は実施例1と同様にしてMFRとMTを測定して表2に示した。

【0035】

【表2】

成分	実施例					比較例
	1	2	3	4	5	1
成分 重量部						
参考例 1	2	3				
参考例 2			1	2	3	
(A) 成分 PP1	98	97	99	98	97	100
PP2						
成分(A)	98.8	98.2	99.3	98.7	98.0	100
組成(B)	0.5	0.8	0.3	0.6	1.0	
重量%(C)	0.7	1.0	0.3	0.7	1.0	
MFR*	0.48	0.47	0.44	0.38	0.35	0.68
MT **	7.4	8.8	6.0	8.0	9.8	4.5

*MFR=(g/10min.), **MT=(g)

【0036】〔実施例6～7〕参考例1で得られたポリアミド繊維強化樹脂組成物に更に(A)成分としてポリ

プロピレン(グランドポリマー社製, J101W, 融点166℃, MFR=1.4)を表2に示した配合で, 2

20℃で混練して二軸押出機でシリンダー温度190～230℃で押出してペレット化して高溶融張力ポリプロピレン組成物を得た。このペレットのMFRとMTを測定して表3に示した。

【0037】〔実施例8～10〕参考例2で得られたポリアミド繊維強化樹脂組成物に更に(A)成分としてポリプロピレン(グラントポリマー社製, J101W, 融点166℃, MFR=1.4)を表2に示した配合で、二軸押出機でシリンダー温度190～230℃で押出してペレット化して高溶融張力ポリプロピレン組成物を得

た。このペレットのMFRとMTを測定して表3に示した。

【0038】〔比較例2〕参考例のポリアミド繊維強化樹脂組成物を配合しなかった以外は実施例6と同様にMFRとMTを測定して表3に示した。

【0039】〔比較例3〕参考例1のポリアミド繊維強化樹脂組成物を15重量部配合した以外は実施例6と同様にMFRとMTを測定して表3に示した。

【0040】

【表3】

例	実施例					比較例	
	6	7	8	9	10	2	3
成分 重量部							
参考例 1	2	3					
参考例 2			1	2	3		15
(A) 成分 PPI							
PP299	98	99	98	97	100	85	
成分 (A)	99.4	98.8	99.3	98.7	98	100	91
組成 (B)	0.3	0.5	0.3	0.6	1		4
重量% (C)	0.3	0.7	0.3	0.7	1		5
MFR*	1.33	1.16	1.33	1.2	1.1	1.4	1.9
MT **	2.5	3.8	2.9	3.9	4.8	2.1	<0.5

*MFR=(g/10min.), **MT=(g)

【0041】〔実施例11〕実施例4のポリプロピレン組成物を使用して円筒状ブロー成形を行った。L/D=26の一軸押出機と空冷リング、直径100mmの環状ダイとからなる水急冷ブロー成形フィルムライン装置を用いて空気リングを9mmにセットしてノズル位置の高さ1.9mであった。温度210℃で容易に加工され、厚みの変動係数は小さかった。フィルムの光沢も良好であった。結果を表4に示した。

【0042】〔比較例4〕比較例1を使用した以外は実施例11と同様にした。200℃以上の温度ではフィルムラインでは加工できなかった。200℃で得られたフィルムの厚さ変動係数が大きかった。フィルムの光沢も実施例11に比べて劣っていた。結果を表4に示した。

【0043】

【表4】

例	実施例11	比較例4
加工温度 ℃	210	200
押出量 kg/hr	15	14
ドローダウン比 MD/CD	6.7/2.3	6.1/2.3
平均厚さ mm	0.034/0.033	0.040/0.042
厚さの変動係数 MD/CD	2.3/6.9	8.7/25.6
光沢度 %	39	16

【0044】

【発明の効果】本発明のポリオレフィン組成物は強化繊

維が微細なため溶融張力が高く、ブロー成形、発泡成形などに有効である。